

日本国特許庁 10/019975
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

17.04.00

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application:

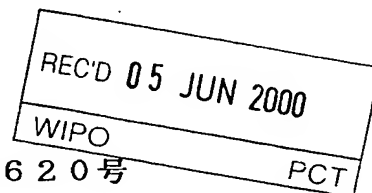
1999年 4月26日

出願番号
Application Number:

平成11年特許願第117620号

出願人
Applicant(s):

松下電器産業株式会社

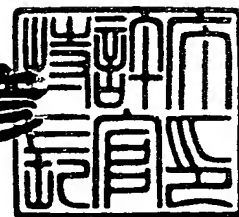


PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 5月19日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近藤隆彦



出証番号 出証特2000-3037045

【書類名】 特許願

【整理番号】 2033710048

【提出日】 平成11年 4月26日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 羽藤 一仁

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 酒井 修

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 小原 英夫

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 新倉 順二

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 行天 久朗

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 松本 敏宏

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 神原 輝壽

【特許出願人】

【識別番号】 000005821

【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100097445

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩橋 文雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100103355

【弁理士】

【氏名又は名称】 坂口 智康

【選任した代理人】

【識別番号】 100109667

【弁理士】

【氏名又は名称】 内藤 浩樹

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011305

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9809938

【プルーフの要否】 不要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池の運転方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 高分子電解質膜を挟む一対の電極と、導電性セパレータと、前記電極に燃料ガスと酸化剤ガスとを供給排出する手段と、前記燃料ガスもしくは前記酸化剤ガスの加湿手段と、前記電極と平行な面方向に冷却水を流通する手段を具備した高分子電解質型燃料電池の運転方法であって、

前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガスの飽和水蒸気圧、前記燃料ガスの水蒸気圧、前記酸化剤ガスの飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガスの水蒸気圧、前記電極の温度、出力電流値より選ばれる少なくとも 1 種の物理量を計測し、

前記冷却水の流通方向、前記冷却水の温度、前記冷却水の流量、前記燃料ガスの供給量、前記酸化剤ガスの供給量、前記燃料ガスの加湿量、前記酸化剤ガスの加湿量、前記電極の温度、前記電極の温度分布、または出力電流値より選ばれる少なくとも 1 種の物理量を調節することにより、

前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガスの飽和水蒸気圧、前記燃料ガスの水蒸気圧、前記酸化剤ガスの飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガスの水蒸気圧、前記電極の温度、出力電流値より選ばれる少なくとも 1 種の物理量を独立変数とする特性関数により算出される特性値を、所定値に維持することを特徴とする高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【請求項 2】 高分子電解質型燃料電池は、燃料ガスおよび酸化剤ガスの排出口が、前記ガス排出口の後段に設けた熱交換器・全熱交換器等の不可避の圧力損失を除いて実質的に常圧に解放されたことを特徴とする請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【請求項 3】 特性関数は（数 1）で表され、（数 1）より算出される特性値 Y を、第 1 所定値以上でかつ第 2 所定値以下に維持することを特徴とする請求項 1 または 2 記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【数 1】

$$Y = V^m \times (dP)^n$$

但し、 V 及び dP はそれぞれ、

燃料ガスもしくは酸化剤ガスの流速、

及び燃料ガスもしくは酸化剤ガスの飽和水蒸気圧と

水蒸気圧との差。

また、 m 及び n は予め定めた数値。

【請求項 4】 高分子電解質型燃料電池運転時間または出力特性に対応し、第 1 所定値、第 2 所定値、(数 1) 中のパラメーター m 、または (数 1) 中のパラメーター n より選ばれる少なくとも 1 種を規定することを特徴とする請求項 1、2 または 3 記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【請求項 5】 燃料ガスもしくは酸化剤ガスを投入する電極部を電極出発点、前記前記燃料ガスもしくは前記酸化剤ガスが排出される前記電極部を電極出口点とし、前記電極出発点の温度を前記電極出口点の温度より低くすることを特徴とする請求項 1、2、3 または 4 記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【請求項 6】 電極出発点から電極出口点までの電極の温度は、上に凸となる曲線的な温度変化を有すること特徴とする請求項 5 記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、家庭内コージェネシステム等に使用する常温作動型の高分子電解質型燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

高分子電解質型燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気など酸素を含

有する酸化剤ガスとを、電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させるものである。その構造は、まず、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜の両面に、白金系の金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする触媒反応層を形成する。次に、この触媒反応層の外面に、燃料ガスまたは酸化剤ガスの通気性と、電子導電性を併せ持つ拡散層を形成し、触媒反応層とこの拡散層とを合わせて電極とする。この、電極と電解質膜の接合体をMEAと呼ぶ。

【0003】

次に、供給するガスが外にリークしたり、燃料ガスと酸化剤ガスが互いに混合しないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスケットを配置する。このガスケットは、場合によっては、電極及び高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立て、これをMEAと呼ぶ場合もある。

【0004】

MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電氣的に直列に接続するための導電性のセパレータ板を配置する。セパレータ板のMEAと接触する部分には、電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路を形成する。ガス流路はセパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータの表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。

【0005】

通常、燃料電池を実際に使用するときは、上述の単電池を数多く重ねた積層構造を採っている。燃料電池の運転時には電力発生と共に発熱が起こるが、積層電池では、単電池1～2セル毎に冷却板を設け、電池温度を一定に保つと同時に発生した熱エネルギーを温水などの形で利用できるようにしている。冷却板としては薄い金属板の内部に冷却水などの熱媒体が貫流する構造が一般的であるが、単電池を構成するセパレータの背面、すなわち冷却水を流したい面を流路加工し冷却板を構成する構造もある。その際、冷却水などの熱媒体をシールするためのオーリングやガスケットも必要となる。このシールではオーリングを完全につぶすなどして冷却板の上下間で十分な導電性が確保されていることが必要である。

【0006】

このような積層電池では、マニホールドと呼ばれる各単電池への燃料ガスの供給排出孔が必要である。これには、冷却水の供給排出孔を積層電池内部に確保した、いわゆる内部マニホールド型が一般的である。

【 0 0 0 7 】

内部マニホールド形式、または外部マニホールド形式のいずれを用いても、冷却部を含む複数の単電池を一方向に積み重ね、その両端に一对の端板を配し、その2枚の端板の間を締結ロッドで固定することが必要である。締め付け方式は、単電池を面内でできるだけ均一に締め付けることが望ましい。機械的強度の観点から、端板や締結ロッドには通常ステンレスなどの金属材料を用いる。これらの端板や締結ロッドと、積層電池とは、絶縁板により電氣的に絶縁し、電流が端板を通して外部に漏れ出ることのない構造とする。締結ロッドについても、セパレータ内部の貫通孔の中を通したり、積層池全体を端板越しに金属のベルトで締め上げる方式も提案されている。

【 0 0 0 8 】

【発明が解決しようとする課題】

以上に示した高分子電解質型燃料電池は、電解質膜が水分を含んだ状態で電解質として機能するため、供給する燃料ガスや酸化剤ガスを加湿して供給する必要がある。また、高分子電解質膜は、少なくとも100℃までの温度範囲では、含水率が高くなればなるほど、イオン伝導度が増加し、電池の内部抵抗を低減させ、高性能にする効果がある。そこで、電解質膜中の含水率を高めるためには、供給ガスを高加湿にして供給する必要がある。しかしながら、電池運転温度以上の高加湿ガスを供給すると、電池内部で結露水が発生し、水滴がスムーズなガスの供給を阻害するとともに、酸化剤ガスを供給する空気極側では、発電によって水が生成するため、生成水の除去効率が低下し、電池性能を低下させる問題が発生する。そのため、通常は電池運転温度より若干低めの露点に加湿してガスを供給する。

【 0 0 0 9 】

供給ガスの加湿方法としては、所定の温度に保った脱イオン水中に供給ガスをバブリングし加湿するバブラー加湿方式や、電解質膜などの水分が容易に移動可

能な膜の一方の面に所定の温度に保った脱イオン水を流し、他方の面に供給ガスを流して加湿する膜加湿方式が一般的である。燃料ガスとして、メタノールやメタンなどの化石燃料を水蒸気改質したガスを用いる場合には、改質ガス中に水蒸気を含んでいるため、加湿が必要ない場合もある。

【 0 0 1 0 】

加湿された燃料ガスや酸化剤ガスは、高分子電解質型燃料電池に供給され、発電に供する。このとき、電池積層体中の任意の単電池の単一面内では、電流密度の分布が発生する。すなわち、燃料ガスはガス供給入り口部で所定量の加湿がなされ供給されるが、燃料ガス中の水素が発電によって消費されるため、ガス上流部ほど水素分圧が高く水蒸気分圧が低く、ガス下流部ほど水素分圧が低く水蒸気分圧が高くなる現象が発生する。また、酸化剤ガスもガス供給入り口部で所定の加湿がなされ供給されるが、酸化剤ガス中の酸素が発電によって消費され、発電によって生成した水が発生するため、ガス上流部ほど酸素分圧が高く水蒸気分圧が低く、ガス下流部ほど酸素分圧が低く水蒸気分圧が高くなる現象が発生する。さらに、電池を冷却するための冷却水温度は、入り口ほど低く、出口ほど高くなるため、電池の単一面内に温度分布が発生する。以上のような理由から、電池の単一面内では電流密度分布（性能分布）が発生する。

【 0 0 1 1 】

また、上述のような理由で発生した、電池の単一面内での燃料ガス中の水素や水蒸気分圧の不均一や、酸化剤ガス中の酸素や水蒸気分圧の不均一、さらに温度分布などが、極端に大きくなり最適な状態から逸脱すると、極端な乾きすぎ（オーバードライ）状態や、極端な濡れすぎ（オーバーフラッディング）状態を招来し、電流密度分布の発生程度では収まらず、場合によっては電池として機能しなくなる。

【 0 0 1 2 】

さらに、上述のような理由で発生した、電池の単一面内での燃料ガス中の水素や水蒸気分圧の不均一や、酸化剤ガス中の酸素や水蒸気分圧の不均一、さらに温度分布などによって、電池の単一面内でオーバードライとオーバーフラッディングが共存する現象も発生しうる。

【 0 0 1 3 】

電池を高積層にした場合、積層した多数の電池の一部の電池に上述のような問題が発生すると、一部の性能低下した電池のために、積層電池全体の運転に支障を来す。すなわち、積層した電池の一部の電池がオーバーフラッディングに陥った場合、オーバーフラッディングに陥った電池は、ガス供給のための圧力損失が増大する。ガス供給のマニホールドは、積層電池内で共通であるため、オーバーフラッディングに陥った電池には、ガスが流れにくくなり、結果として益々オーバーフラッディングを招来する。逆に、積層電池の一部がオーバードライに陥った場合、オーバードライに陥った電池は、ガス供給のための圧力損失が減少する。従って、オーバードライに陥った電池には、ガスが流れやすくなり、結果として益々オーバードライを招来する。

【 0 0 1 4 】

上述のような問題は、燃料ガスを供給する燃料極側においても、酸化剤ガスを供給する空気極側においても、ガス入り口側に比べてガス出口側ほどガス中の水蒸気分圧が高くなることに起因する場合が多い。そこで、特表平 9 - 5 1 1 3 5 6 に示されているように、酸化剤ガスの流れ方向と冷却水の流れ方向を同方向とし、冷却水の温度分布により酸化剤ガスの下流部の温度を上流部に比べて高くすることで、空気極下流部のオーバーフラッディングを抑制し、電池の単一面内の電流密度分布を低減させる試みもなされてきた。

【 0 0 1 5 】

しかしながら、電池にガスを供給する場合、ガス入り口部では必ず圧力損失が存在するため、電池内部では、供給ガスの圧力分布も存在し、必ず入り口側が高圧になる。空気極側では、水が生成するため、水蒸気分圧は出口側ほど高くなるが、圧力分布の影響で、電池運転条件によっては、相対湿度は必ずしも出口側が高くなるとは限らない。そのため、入り口側ほど相対湿度が高くなる運転条件で電池を発電させ、酸化剤ガスの流れ方向と冷却水の流れ方向を同方向とし、冷却水の温度分布により酸化剤ガスの下流部の温度を上流部に比べて高くすると、ガス入り口側でのオーバーフラッディングが加速され逆効果となる。

【 0 0 1 6 】

【課題を解決するための手段】

以上の課題を解決するため本発明は、高分子電解質膜を挟む一对の電極と、導電性セパレータと、前記電極に燃料ガスと酸化剤ガスとを供給排出する手段と、前記燃料ガスもしくは前記酸化剤ガスの加湿手段と、前記電極と平行な面方向に冷却水を流通する手段を具備した高分子電解質型燃料電池の運転方法であって、（前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガスの飽和水蒸気圧、前記燃料ガスの水蒸気圧、前記酸化剤ガスの飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガスの水蒸気圧、前記電極の温度、出力電流値）より選ばれる少なくとも1種の物理量を計測し、（前記冷却水の流通方向、前記冷却水の温度、前記冷却水の流量、前記燃料ガスの供給量、前記酸化剤ガスの供給量、前記燃料ガスの加湿量、前記酸化剤ガスの加湿量、前記電極の温度、前記電極の温度分布、または出力電流値）より選ばれる少なくとも1種の物理量を調節することにより、（前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガスの飽和水蒸気圧、前記燃料ガスの水蒸気圧、前記酸化剤ガスの飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガスの水蒸気圧、前記電極の温度、出力電流値）より選ばれる少なくとも1種の物理量を独立変数とする特性関数により算出される特性値を、所定値に維持することを特徴とする高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【0017】

また、高分子電解質型燃料電池は、燃料ガスおよび酸化剤ガスの排出口が、前記ガス排出口の後段に設けた熱交換器・全熱交換器等の不可避の圧力損失を除いて実質的に常圧に解放されたことを特徴とする。

【0018】

また、特性関数は（数2）で表され、（数2）より算出される特性値Yを、第1所定値以上でかつ第2所定値以下に維持することを特徴とする。

【0019】

【数 2】

$$Y = V^m \times (dP)^n$$

但し、V 及び dP はそれぞれ、

燃料ガスもしくは酸化剤ガスの流速、

及び燃料ガスもしくは酸化剤ガスの飽和水蒸気圧と

水蒸気圧との差。

また、m 及び n は予め定めた数値。

【0 0 2 0】

また、高分子電解質型燃料電池運転時間または出力特性に対応し、第 1 所定値、第 2 所定値、(数 2) 中のパラメーター m、または (数 2) 中のパラメーター n より選ばれる少なくとも 1 種を規定することを特徴とする。

【0 0 2 1】

また、燃料ガスもしくは酸化剤ガスを投入する電極部を電極出発点、前記前記燃料ガスもしくは前記酸化剤ガスが排出される前記電極部を電極出口点とし、前記電極出発点の温度を前記電極出口点の温度より低くすることを特徴とする請求項 1、2、3 または 4 記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【0 0 2 2】

また、電極出発点から電極出口点までの電極の温度は、上に凸となる曲線的温度変化を有すること特徴とする請求項 5 記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

【0 0 2 3】

【発明の実施の形態】

本発明の実施の形態とは、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差とで表される関数によって、最適な運転状態が表されるよう調整して

運転することを特徴とする。

【0024】

また、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以上、 $70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以下となるように調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0025】

また、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、高分子電解質型燃料電池のガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以上、 $70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以下となるように調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0026】

また、高分子電解質型燃料電池のガスの排出口が、ガス排出口の後段に設けられた熱交換器・全熱交換器等の不可避の圧力損失を除いて実質的に常圧に解放された高分子電解質型燃料電池において、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、高分子電解質型燃料電池のガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以上、 $70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以下となるように調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0027】

また、高分子電解質型燃料電池のガスの排出口が、ガス排出口の後段に設けられた熱交換器・全熱交換器等の不可避の圧力損失を除いて実質的に常圧に解放された高分子電解質型燃料電池において、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度

とを調整することによって、高分子電解質型燃料電池のガス入り近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が、ガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値より大きくなるよう調整し、かつ高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整によって高分子電解質型燃料電池の面内温度の分布を、ガス入り口近傍よりガス出口近傍の方が高くなるよう設定して、ガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以上、 $70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以下となるように調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0028】

また、高分子電解質型燃料電池へのガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、高分子電解質型燃料電池のガス入り近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が、ガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値より大きくなるよう調整し、かつ高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整によって高分子電解質型燃料電池の面内温度の分布が直線的な分布より上に凸となるよう設定して、ガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以上、 $70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ 以下となるように調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0029】

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、酸化剤ガス供給量と、酸化剤ガスに供給する加湿量と、電流密度とを調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0030】

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池に供給するガスの入り口圧力損失が $0.5 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{cm}^2$ 以下であることによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0031】

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、電流密度が 0.5 A/cm^2 より小さい場合には、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \text{ kg} \cdot \text{f/sec} \cdot \text{m}$ 以上、 $30,000 \text{ kg} \cdot \text{f/sec} \cdot \text{m}$ 以下となるように調整して運転し、電流密度が 0.5 A/cm^2 より大きい場合には、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $8,000 \text{ kg} \cdot \text{f/sec} \cdot \text{m}$ 以上、 $40,000 \text{ kg} \cdot \text{f/sec} \cdot \text{m}$ 以下となるように調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0032】

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流通面全体にわたっての、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値の分布が、 $10,000 \text{ kg} \cdot \text{f/sec} \cdot \text{m}$ 以内となるように調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0033】

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の性能が経時的に劣化した場合には、冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $20,000 \text{ kg} \cdot \text{f/sec} \cdot \text{m}$ 以上となるように調整して運転することによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0034】

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の供給ガス入り口側と供給ガス出口側の内、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が大きい側を冷却水入り口側と同一方向とし、供給ガス入り口側と供給ガス出口側の内、

ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が小さい側を冷却水出口側と同一方向とすることによって、電池の単一面内の電流密度分布を低減させることができる。

【0035】

【実施例】

以下、本発明に好適の実施例を、図面を参照しながら説明する。

【0036】

(実施例1)

高分子電解質型燃料電池の単一面内での電流密度分布（性能分布）を確認するため、図1に示すように5分割したセパレーターを用いて、電池の単一面内でセルを5分割し、それぞれの部位の性能を個別に測定できる20セル積層電池を試作した。MEAの試作は以下のように行った。粒径が数ミクロン以下のカーボン粉末を、塩化白金酸水溶液に浸漬し、還元処理によりカーボン粉末の表面に白金触媒を担持させた。このときのカーボンと担持した白金の重量比は1:1とした。ついで、この白金を担持したカーボン粉末を高分子電解質のアルコール溶液中に分散させ、スラリー化した。

【0037】

一方、電極となる厚さ250 μ mのカーボンペーパーを、フッ素樹脂の水性デイスパージョン（ダイキン工業（株）製のネオフロンND1）に含浸した後、これを乾燥し、400℃で30分加熱処理することで撥水性を付与した。つぎに撥水处理を施した前記カーボンペーパーの片面にカーボン粉末を含む前記スラリーを均一に塗布して触媒層を形成し、これを電極とした。

【0038】

以上の方法で作成した2枚のカーボンペーパー電極を、触媒層を形成した面を内側に向け、高分子電解質膜を挟んで重ね合わせた後、乾燥した。以上のカーボンペーパー電極は、長さ3.6cm、幅を9cmとし、十分に大きい長さ・幅を有する高分子電解質膜の中央に、一定の間隔を置いて5枚配置し、単一面内で5分割した電極を試作した。供給する燃料ガスがリークしたり、互いに混合しないように、電極の周囲に高分子電解質膜を挟んで、約250 μ mの厚みのシリコン

ゴムのシートを配し、120℃で5分間ホットプレスし、MEA（電極電解質膜接合体）を得た。

【0039】

セパレータ板は、厚さが4mmで、その表面には切削加工により幅2mm、深さ1mmのガス流路1を刻んでおり、その周辺部にはガスのマニホールド孔2と冷却水のマニホールド孔3を配した。このような単電池を2セル積層した後、冷却水が流れる冷却流路を、セパレータに形成した冷却部を積層し、このパターンを繰り返して積層した。冷却部のシール用Oリングは用いなかった。

【0040】

このような電池構成単位を20セル積層し、両端部には金属製の集電板と電気絶縁材料の絶縁板、さらに端板と締結ロッドで固定した。この時の締結圧はセパレータの面積当たり10kgf/cm²とした。この20セル電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を75℃に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。

【0041】

まず、電池運転温度を75℃に設定し、温度分布を極力抑えるため、75℃に設定した冷却水量を20L/minと比較的大量に流し、U_f（燃料ガス中の水素の消費率）=80%、U_o（酸化剤ガス中の酸素の消費率）=20%に設定して電池面内の性能分布を調べた。

【0042】

図2には、20セル積層した電池を、0.3A/cm²と0.7A/cm²の定電流密度で運転した場合の20セルの平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5分割した電池の最もガス入り口側に近いセルをNo.1とし、順次No.2、No.3、No.4として、最もガス出口側に近いセルをNo.5とした。図2より、0.3A/cm²の電流密度では、酸化剤ガスバブラー温度が比較的低い温度では、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかしながら、バブラー温度を高くすると、ガス入り口に最も近い部位のNo.1セルか

ら順に性能が急激に低下した。このとき、No. 1セルは、内部抵抗の測定からオーバーフラッディング状態にあることが分かった。また、酸化剤ガスバブラー温度が70℃の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.2 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{cm}^2$ であった。このときの、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (v) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 (ΔP) の積の絶対値 ($v \cdot \Delta P$) との関係を表1に示した。

【0043】

【表1】

バブラー温度(℃)		40	50	60	65	70	75
$v \cdot \Delta P$ $(\text{kg} \cdot \text{f} / \text{s} \cdot \text{m})$	ガス入口	39,000	29,000	17,000	11,000	200	0
	ガス出口	33,000	25,000	13,000	9,000	2,500	0

【0044】

$v \cdot \Delta P$ が、約2,000程度より小さい場合には、オーバーフラッディング状態、 $v \cdot \Delta P$ が約30,000より大きい場合にはオーバードライ状態であり、最適な運転状態における $v \cdot \Delta P$ は2,000から30,000程度であった。

【0045】

次に、 $0.7 \text{ A} / \text{cm}^2$ の電流密度では、酸化剤ガスバブラー温度が比較的低い温度では、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかしながら、バブラー温度を高くすると、ガス入り口に最も近い部位のNo. 1セルの性能が急激に低下した。このとき、No. 1セルは、内部抵抗の測定からオーバーフラッディング状態にあることが分かった。また、酸化剤ガスバブラー温度が70℃の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.4 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{cm}^2$ であった。このときの、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (v) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 (ΔP) の積の絶対値 ($v \cdot \Delta P$) との関係を表2に示した。

【0046】

【表 2】

バブラー温度(℃)		30	40	50	55	60	65
V・ΔP (kg・f/s・m)	ガス入口	70,000	63,000	49,000	39,000	24,000	1,800
	ガス出口	58,000	53,000	45,000	39,000	31,000	20,000

【0 0 4 7】

v・ΔPが、約2, 0 0 0程度より小さい場合には、オーバーフラッディング状態、v・ΔPが約7 0, 0 0 0の場合にはややオーバードライ状態であり、最適な運転状態におけるv・ΔPは2, 0 0 0から7 0, 0 0 0程度であった。また、上記条件下では、電池の単一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。また、v・ΔPが2, 0 0 0から7 0, 0 0 0の間でない条件では、積層した2 0セルの内、極端に性能の低下が観測されるセルが発生した。

【0 0 4 8】

(実施例 2)

高分子電解質型燃料電池の単一面内での電流密度分布（性能分布）を確認するため、図1に示すように5分割したセパレーターを用いて、電池の単一面内でセルを5分割し、それぞれの部位の性能を個別に測定できる2 0セル積層電池を試作した。MEAの試作は以下のように行った。粒径が数ミクロン以下のカーボン粉末を、塩化白金酸水溶液に浸漬し、還元処理によりカーボン粉末の表面に白金触媒を担持させた。このときのカーボンと担持した白金の重量比は1：1とした。ついで、この白金を担持したカーボン粉末を高分子電解質のアルコール溶液中に分散させ、スラリー化した。

【0 0 4 9】

一方、電極となる厚さ2 5 0 μmのカーボンペーパーを、フッ素樹脂の水性ディスパーション（ダイキン工業（株）製のネオフロンND1）に含浸した後、これを乾燥し、4 0 0℃で3 0分加熱処理することで撥水性を付与した。つぎに撥水処理を施した前記カーボンペーパーの片面にカーボン粉末を含む前記スラリーを均一に塗布して触媒層を形成し、これを電極とした。

【 0 0 5 0 】

以上の方法で作成した 2 枚のカーボンペーパー電極を、触媒層を形成した面を内側に向け、高分子電解質膜を挟んで重ね合わせた後、乾燥した。以上のカーボンペーパー電極は、長さ 3. 6 c m、幅を 9 c m とし、十分に大きい長さ・幅を有する高分子電解質膜の中央に、一定の間隔を置いて 5 枚配置し、単一面内で 5 分割した電極を試作した。供給する燃料ガスがリークしたり、互いに混合しないように、電極の周囲に高分子電解質膜を挟んで、約 2 5 0 μ m の厚みのシリコンゴムのシートを配し、1 2 0 $^{\circ}$ C で 5 分間ホットプレスし、M E A（電極電解質膜接合体）を得た。

【 0 0 5 1 】

セパレータ板は、厚さが 4 m m で、その表面には切削加工により幅 2 m m、深さ 1 m m のガス流路 1 を刻んでおり、その周辺部にはガスのマニホールド孔 2 と冷却水のマニホールド孔 3 を配した。このような単電池を 2 セル積層した後、冷却水が流れる冷却流路を、セパレータに形成した冷却部を積層し、このパターンを繰り返して積層した。冷却部のシール用 O - リングは用いなかった。

【 0 0 5 2 】

このような電池構成単位を 2 0 セル積層し、両端部には金属製の集電板と電気絶縁材料の絶縁板、さらに端板と締結ロッドで固定した。この時の締結圧はセパレータの面積当たり 1 0 k g f / c m ² とした。この 2 0 セル電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を 7 5 $^{\circ}$ C に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。7 5 $^{\circ}$ C に設定した冷却水量を 2 L / m i n 流し、U f（燃料ガス中の水素の消費率）= 8 0 %、U o（酸化剤ガス中の酸素の消費率）= 2 0 % に設定して電池面内の性能分布を調べた。

【 0 0 5 3 】

図 3 には、2 0 セル積層した電池を、0. 3 A / c m ² と 0. 7 A / c m ² の定電流密度で運転した場合の 2 0 セルの平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5 分割した電池の最もガス入り口側に近いセルを N o. 1 とし

、順次 No. 2、No. 3、No. 4 として、最もガス出口側に近いセルを No. 5 とした。このとき、冷却水流量を比較的少なくしたため、No. 1 から No. 5 のセルの間で温度分布が発生した。電流密度が 0.3 A/cm^2 の場合の 20 セルの平均セル温度は、No. 1 が 74.9°C 、No. 2 が 75.6°C 、No. 3 が 76.5°C 、No. 4 が 77.5°C 、No. 5 が 78.0°C と、ガスの流れに対して上流部ほど温度が低く、下流部ほど温度が高い分布となった。また、 0.7 A/cm^2 の場合の 20 セルの平均セル温度は、No. 1 が 75.2°C 、No. 2 が 77.1°C 、No. 3 が 79.5°C 、No. 4 が 81.9°C 、No. 5 が 83.1°C と、同様にガスの流れに対して上流部ほど温度が低く、下流部ほど温度が高い分布となった。

【0054】

図3より、 0.3 A/cm^2 の電流密度の場合にも、 0.7 A/cm^2 の電流密度の場合においても、ガス入口部に近い No. 1 および No. 2 セルにおいて、セル温度が相対的に低いため、激しいオーバーフラッディング現象による性能低下が観測された。逆に、ガス出口部である No. 4 および No. 5 セルにおいては、セル温度が相対的に高いため、激しいオーバードライ現象による性能低下が観測された。

【0055】

一般に、空気極側では、生成水の発生が起こるため、ガス出口に近い側ほど水蒸気分圧は増大する。そこで、特表平 9-511356 に示されているように、酸化剤ガスの流れ方向と冷却水の流れ方向を同方向とし、冷却水の温度分布により酸化剤ガスの下流部の温度を上流部に比べて高くすることで、空気極下流部のオーバーフラッディングを抑制し、電池の単一面内の電流密度分布を低減させる試みもなされてきた。しかしながら、本実施例においては、 $U_o = 20\%$ と、比較的低い U_o による運転であったため、酸化剤ガスバブラー温度が 70°C の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.4 \text{ kg} \cdot \text{f/cm}^2$ と比較的高く、生成水の発生によるガス出口部の水蒸気分圧の増大の効果より、ガス入口部の圧力損失によるガス入口部での相対湿度の上昇の方が大きく作用し、そのため、本来ガス入口側の方がオーバーフラッディング状態にあり、むしろガス出口側の方がオーバード

ライ状態にあったのを、温度分布によってガス出口側の温度を相対的に上昇させる結果となったため、ガス出口側のオーバードライを増幅させ、ガス入口側のオーバーフラッディングを増幅させる逆効果となった。

【0056】

0.3 A/cm²の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速（v）と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差（ΔP）の積の絶対値（v・ΔP）との関係を表3に示す。

【0057】

【表3】

バブラー温度(℃)		40	50	60	65	70	75
v・ΔP (kg・f/s・m)	ガス入口	35,000	20,000	15,000	9,000	100	0
	ガス出口	55,000	43,000	32,000	27,000	5,500	2,000

【0058】

0.7 A/cm²の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速（v）と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差（ΔP）の積の絶対値（v・ΔP）との関係を表4に示す。

【0059】

【表4】

バブラー温度(℃)		30	40	50	55	60	65
v・ΔP (kg・f/s・m)	ガス入口	60,000	53,000	48,000	36,000	21,000	1,000
	ガス出口	88,000	73,000	65,000	49,000	41,000	30,000

【0060】

また、v・ΔPが2,000から70,000の間でない条件では、電池の単一面内でオーバーフラッディングとオーバードライが共存する部位が発生し、積層した20セルの内、極端に性能の低下が観測され、積層電池を安定的に運転す

ることが困難であった。

【0061】

(実施例3)

高分子電解質型燃料電池の単一面内での電流密度分布（性能分布）を確認するため、図1に示すように5分割したセパレーターを用いて、電池の単一面内でセルを5分割し、それぞれの部位の性能を個別に測定できる20セル積層電池を試作した。MEAの試作は以下のように行った。粒径が数ミクロン以下のカーボン粉末を、塩化白金酸水溶液に浸漬し、還元処理によりカーボン粉末の表面に白金触媒を担持させた。このときのカーボンと担持した白金の重量比は1：1とした。ついで、この白金を担持したカーボン粉末を高分子電解質のアルコール溶液中に分散させ、スラリー化した。

【0062】

一方、電極となる厚さ250 μ mのカーボンペーパーを、フッ素樹脂の水性デイスパーション（ダイキン工業（株）製のネオフロンND1）に含浸した後、これを乾燥し、400℃で30分加熱処理することで撥水性を付与した。つぎに撥水処理を施した前記カーボンペーパーの片面にカーボン粉末を含む前記スラリーを均一に塗布して触媒層を形成し、これを電極とした。

【0063】

以上の方法で作成した2枚のカーボンペーパー電極を、触媒層を形成した面を内側に向け、高分子電解質膜を挟んで重ね合わせた後、乾燥した。以上のカーボンペーパー電極は、長さ3.6cm、幅を9cmとし、十分に大きい長さ・幅を有する高分子電解質膜の中央に、一定の間隔を置いて5枚配置し、単一面内で5分割した電極を試作した。供給する燃料ガスがリークしたり、互いに混合しないように、電極の周囲に高分子電解質膜を挟んで、約250 μ mの厚みのシリコンゴムのシートを配し、120℃で5分間ホットプレスし、MEA（電極電解質膜接合体）を得た。

【0064】

セパレータ板は、厚さが4mmで、その表面には切削加工により幅2mm、深さ1mmのガス流路1を刻んでおり、その周辺部にはガスのマニホールド孔2と冷

却水のマニホールド孔 3 を配した。このような単電池を 2 セル積層した後、冷却水が流れる冷却流路を、セパレータに形成した冷却部を積層し、このパターンを繰り返して積層した。冷却部のシール用 O-リングは用いなかった。

【0065】

このような電池構成単位を 20 セル積層し、両端部には金属製の集電板と電気絶縁材料の絶縁板、さらに端板と締結ロッドで固定した。この時の締結圧はセパレータの面積当たり 10 kgf/cm^2 とした。この 20 セル電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を 75°C に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、は同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。冷却水は、ガス流れ方向と反対方向になるように導入した。 75°C に設定した冷却水量を 2 L/min 流し、 U_f (燃料ガス中の水素の消費率) = 80%、 U_o (酸化剤ガス中の酸素の消費率) = 20% に設定して電池面内の性能分布を調べた。

【0066】

図 4 には、20 セル積層した電池を、 0.3 A/cm^2 と 0.7 A/cm^2 の定電流密度で運転した場合の 20 セルの平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5 分割した電池の最もガス入り口側に近いセルを No. 1 とし、順次 No. 2、No. 3、No. 4 とし、最もガス出口側に近いセルを No. 5 とした。このとき、冷却水流量を比較的少なくしたため、No. 1 から No. 5 のセルの間で温度分布が発生した。電流密度が 0.3 A/cm^2 の場合の 20 セルの平均セル温度は、No. 1 が 78.2°C 、No. 2 が 77.6°C 、No. 3 が 76.7°C 、No. 4 が 75.9°C 、No. 5 が 75.0°C と、ガスの流れに対して上流部ほど温度が高く、下流部ほど温度が低い分布となった。また、 0.7 A/cm^2 の場合の 20 セルの平均セル温度は、No. 1 が 83.2°C 、No. 2 が 82.1°C 、No. 3 が 79.8°C 、No. 4 が 76.9°C 、No. 5 が 75.1°C と、同様にガスの流れに対して上流部ほど温度が高く、下流部ほど温度が低い分布となった。また、このときの温度分布は No. 1 から No. 5 までが直線的な温度分布ではなく、直線的より上に凸な温度分布であった。

【0067】

図4より、 0.3 A/cm^2 の場合にも、 0.7 A/cm^2 の電流密度の場合においても、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかしながら、バブラー温度依存性は、どのセルNo.においても同様の傾向を示し、全てのセルにおいて非常に安定した特性を示した。

【0068】

一般に、空気極側では、生成水の発生が起こるため、ガス出口に近い側ほど水蒸気分圧は増大する。しかしながら、本実施例においては、 $U_o = 20\%$ と、比較的低い U_o による運転であったため、酸化剤ガスバブラー温度が 70°C の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.4 \text{ kg} \cdot \text{f/cm}^2$ と比較的高く、生成水の発生によるガス出口部の水蒸気分圧の増大の効果より、ガス入口部の圧力損失によるガス入口部での相対湿度の上昇の方が大きく作用し、そのため、本来ガス入口側の方がオーバーフラッディング状態にあり、むしろガス出口側の方がオーバードライ状態にあったのを、温度分布によってガス入口側の温度を相対的に上昇させる結果となったため、ガス入口側のオーバーフラッディングを抑制し、ガス出口側のオーバードライも抑制し、安定な電池特性を得る効果となった。

【0069】

0.3 A/cm^2 の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速(v)と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差(ΔP)の積の絶対値($v \cdot \Delta P$)との関係を表5に示す。

【0070】

【表5】

バブラー温度($^\circ\text{C}$)		40	50	60	65	70	75
$v \cdot \Delta P$ ($\text{kg} \cdot \text{f/s} \cdot \text{m}$)	ガス入口	25,000	15,000	10,000	7,000	5,000	2,000
	ガス出口	28,000	18,000	12,000	8,000	5,500	2,200

【0071】

0.7 A/cm^2 の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー

一温度と、ガス流速（ v ）と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差（ ΔP ）の積の絶対値（ $v \cdot \Delta P$ ）との関係を表 6 に示す。

【0072】

【表 6】

バブラー温度(°C)		30	40	50	55	60	65
V・ ΔP (kg·f/s·m)	ガス入口	35,000	23,000	18,000	16,000	11,000	8,000
	ガス出口	38,000	24,000	19,000	17,000	12,000	9,000

【0073】

以上のことから、 0.3 A/cm^2 の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速（ v ）と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差（ ΔP ）の積の絶対値（ $v \cdot \Delta P$ ）の最適な範囲は、 $2,000 \sim 30,000 \text{ kg} \cdot \text{f/s} \cdot \text{m}$ であり、 0.7 A/cm^2 の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速（ v ）と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差（ ΔP ）の積の絶対値（ $v \cdot \Delta P$ ）の最適な範囲は、 $8,000 \sim 40,000 \text{ kg} \cdot \text{f/s} \cdot \text{m}$ であった。また、上記条件下では、電池の単一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。

【0074】

（実施例 4）

高分子電解質型燃料電池の単一面内での電流密度分布（性能分布）を確認するため、図 1 に示すように 5 分割したセパレーターを用いて、電池の単一面内でセルを 5 分割し、それぞれの部位の性能を個別に測定できる 20 セル積層電池を試作した。MEA の試作は以下のように行った。粒径が数ミクロン以下のカーボン粉末を、塩化白金酸水溶液に浸漬し、還元処理によりカーボン粉末の表面に白金触媒を担持させた。このときのカーボンと担持した白金の重量比は 1 : 1 とした。ついで、この白金を担持したカーボン粉末を高分子電解質のアルコール溶液中に分散させ、スラリー化した。

【0075】

一方、電極となる厚さ $250\text{ }\mu\text{m}$ のカーボンペーパーを、フッ素樹脂の水性デイスパーション（ダイキン工業（株）製のネオフロンND1）に含浸した後、これを乾燥し、 400°C で30分加熱処理することで撥水性を付与した。つぎに撥水処理を施した前記カーボンペーパーの片面にカーボン粉末を含む前記スラリーを均一に塗布して触媒層を形成し、これを電極とした。

【0076】

以上の方法で作成した2枚のカーボンペーパー電極を、触媒層を形成した面を内側に向け、高分子電解質膜を挟んで重ね合わせた後、乾燥した。以上のカーボンペーパー電極は、長さ 3.6 cm 、幅を 9 cm とし、十分に大きい長さ・幅を有する高分子電解質膜の中央に、一定の間隔を置いて5枚配置し、単一面内で5分割した電極を試作した。供給する燃料ガスがリークしたり、互いに混合しないように、電極の周囲に高分子電解質膜を挟んで、約 $250\text{ }\mu\text{m}$ の厚みのシリコンゴムのシートを配し、 120°C で5分間ホットプレスし、MEA（電極電解質膜接合体）を得た。

【0077】

セパレータ板は、厚さが 4 mm で、その表面には切削加工により幅 2 mm 、深さ 1 mm のガス流路1を刻んでおり、その周辺部にはガスのマニホールド孔2と冷却水のマニホールド孔3を配した。このような単電池を2セル積層した後、冷却水が流れる冷却流路を、セパレータに形成した冷却部を積層し、このパターンを繰り返して積層した。冷却部のシール用オーリングは用いなかった。

【0078】

このような電池構成単位を20セル積層し、両端部には金属製の集電板と電気絶縁材料の絶縁板、さらに端板と締結ロッドで固定した。この時の締結圧はセパレータの面積当たり 10 kgf/cm^2 とした。この20セル電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を 75°C に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。

【0079】

まず、電池運転温度を 75℃ に設定し、温度分布を極力抑えるため、75℃ に設定した冷却水量を 20 L/min と比較的大量に流し、 U_f （燃料ガス中の水素の消費率）= 80%、 U_o （酸化剤ガス中の酸素の消費率）= 40% に設定して電池面内の性能分布を調べた。

【0080】

図 5 には、20 セル積層した電池を、 0.7 A/cm^2 の定電流密度で運転した場合の 20 セルの平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5 分割した電池の最もガス入り口側に近いセルを No. 1 とし、順次 No. 2、No. 3、No. 4 とし、最もガス出口側に近いセルを No. 5 とした。

【0081】

図 5 より、 0.7 A/cm^2 の電流密度では、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかしながら、バブラー温度を高くすると、ガス出口に最も近い部位の No. 5 セルから順に性能が急激に低下した。このとき、No. 5 セルは、内部抵抗の測定からオーバーフラッディング状態にあることが分かった。また、酸化剤ガスバブラー温度が 60℃ の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.2 \text{ kg} \cdot \text{f/cm}^2$ であった。このときの、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (v) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 (ΔP) の積の絶対値 ($v \cdot \Delta P$) との関係を表 7 に示す。

【0082】

【表 7】

バブラー温度(℃)		30	40	50	55	60
$v \cdot \Delta P$ ($\text{kg} \cdot \text{f/s} \cdot \text{m}$)	ガス入口	35,000	32,000	27,000	22,000	17,000
	ガス出口	18,000	14,000	11,000	7,000	5,000

【0083】

$v \cdot \Delta P$ が、約 7,000 程度より小さい場合には、オーバーフラッディング状態、 $v \cdot \Delta P$ が約 32,000 の場合にはややオーバードライ状態であり、最適な運転状態における $v \cdot \Delta P$ は 8,000 から 40,000 程度であった。ま

た、上記条件下では、電池の単一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。また、 $v \cdot \Delta P$ のガス入口部とガス出口部の差が 12,000 以上あり、安定に運転できなかった。さらに、 $v \cdot \Delta P$ が、8,000 から 40,000 の間でない条件では、積層した 20 セルの内、極端に性能の低下が観測されるセルが発生した。

【0084】

(実施例 5)

高分子電解質型燃料電池の単一面内での電流密度分布（性能分布）を確認するため、図 1 に示すように 5 分割したセパレーターを用いて、電池の単一面内でセルを 5 分割し、それぞれの部位の性能を個別に測定できる 20 セル積層電池を試作した。MEA の試作は以下のように行った。粒径が数ミクロン以下のカーボン粉末を、塩化白金酸水溶液に浸漬し、還元処理によりカーボン粉末の表面に白金触媒を担持させた。このときのカーボンと担持した白金の重量比は 1 : 1 とした。ついで、この白金を担持したカーボン粉末を高分子電解質のアルコール溶液中に分散させ、スラリー化した。

【0085】

一方、電極となる厚さ 250 μm のカーボンペーパーを、フッ素樹脂の水性デイスパーション（ダイキン工業（株）製のネオフロン ND1）に含浸した後、これを乾燥し、400℃で 30 分加熱処理することで撥水性を付与した。つぎに撥水処理を施した前記カーボンペーパーの片面にカーボン粉末を含む前記スラリーを均一に塗布して触媒層を形成し、これを電極とした。

【0086】

以上の方法で作成した 2 枚のカーボンペーパー電極を、触媒層を形成した面を内側に向け、高分子電解質膜を挟んで重ね合わせた後、乾燥した。以上のカーボンペーパー電極は、長さ 3.6 cm、幅を 9 cm とし、十分に大きい長さ・幅を有する高分子電解質膜の中央に、一定の間隔を置いて 5 枚配置し、単一面内で 5 分割した電極を試作した。供給する燃料ガスがリークしたり、互いに混合しないように、電極の周囲に高分子電解質膜を挟んで、約 250 μm の厚みのシリコンゴムのシートを配し、120℃で 5 分間ホットプレスし、MEA（電極電解質膜

接合体)を得た。

【0087】

セパレータ板は、厚さが4mmで、その表面には切削加工により幅2mm、深さ1mmのガス流路1を刻んでおり、その周辺部にはガスのマニホールド孔2と冷却水のマニホールド孔3を配した。

【0088】

このような単電池を2セル積層した後、冷却水が流れる冷却流路を、セパレータに形成した冷却部を積層し、このパターンを繰り返して積層した。冷却部のシール用Oリングは用いなかった。

【0089】

このような電池構成単位を20セル積層し、両端部には金属製の集電板と電気絶縁材料の絶縁板、さらに端板と締結ロッドで固定した。この時の締結圧はセパレータの面積当たり 10 kgf/cm^2 とした。この20セル電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を 75°C に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。 75°C に設定した冷却水量を 2 L/min 流し、 U_f (燃料ガス中の水素の消費率) = 80%、 U_o (酸化剤ガス中の酸素の消費率) = 40%に設定して電池面内の性能分布を調べた。

【0090】

図6には、20セル積層した電池を、 0.7 A/cm^2 の定電流密度で運転した場合の20セルの平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5分割した電池の最もガス入り口側に近いセルをNo. 1とし、順次No. 2、No. 3、No. 4として、最もガス出口側に近いセルをNo. 5とした。このとき、冷却水流量を比較的少なくしたため、No. 1からNo. 5のセルの間で温度分布が発生した。電流密度が 0.7 A/cm^2 の場合の20セルの平均セル温度は、No. 1が 75.1°C 、No. 2が 77.0°C 、No. 3が 79.7°C 、No. 4が 81.8°C 、No. 5が 83.0°C と、ガスの流れに対して上流部ほど温度が低く、下流部ほど温度が高い分布となった。また、このときの温度分布

はN o. 1 からN o. 5 までは直線的な温度分布ではなく、直線的より上に凸な温度分布であった。

【0091】

図6より、 0.7 A/cm^2 の電流密度の場合、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかしながら、バブラー温度依存性は、どのセルN o. においても同様の傾向を示し、全てのセルにおいて非常に安定した特性を示した。

【0092】

一般に、空気極側では、生成水の発生が起こるため、ガス出口に近い側ほど水蒸気分圧は増大する。一方、ガス入口部の圧力損失により、ガス出口部に比べてガス入口部が高圧となるため、ガス入口部の相対湿度が上昇する。しかしながら、本実施例においては、酸化剤ガスバブラー温度が 70°C の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.2 \text{ kg} \cdot \text{f/cm}^2$ と比較的低く、ガス入口部の圧力損失によるガス入口部での相対湿度の上昇より、生成水の発生によるガス出口部の水蒸気分圧の増大の効果の方が大きく作用し、そのため、本来ガス出口側の方がオーバーフラッディング状態にあり、ガス入口側の方がオーバードライ状態にあったのを、温度分布によってガス出口側の温度を相対的に上昇させる結果となったため、ガス出口側のオーバーフラッディングを抑制し、ガス入口側のオーバードライも抑制し、安定な電池特性を得る効果となった。

【0093】

0.7 A/cm^2 の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (v) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 (ΔP) の積の絶対値 ($v \cdot \Delta P$) との関係を表8に示す。

【0094】

【表8】

バブラー温度($^\circ\text{C}$)		30	40	50	55	60	65
$v \cdot \Delta P$ ($\text{kg} \cdot \text{f/s} \cdot \text{m}$)	ガス入口	36,000	33,000	27,000	23,000	18,000	10,000
	ガス出口	38,000	36,000	33,000	28,000	25,000	20,000

【0095】

以上のことから、 0.7 A/cm^2 の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速（ v ）と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差（ ΔP ）の積の絶対値（ $v \cdot \Delta P$ ）の最適な範囲は、 $10,000 \sim 38,000 \text{ kg} \cdot \text{f/s} \cdot \text{m}$ であった。また、上記条件下では、電池の単一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。

【0096】

（実施例6）

高分子電解質型燃料電池の単一面内での電流密度分布（性能分布）を確認するため、図1に示すように5分割したセパレーターを用いて、電池の単一面内でセルを5分割し、それぞれの部位の性能を個別に測定できる20セル積層電池を試作した。MEAの試作は以下のように行った。粒径が数ミクロン以下のカーボン粉末を、塩化白金酸水溶液に浸漬し、還元処理によりカーボン粉末の表面に白金触媒を担持させた。このときのカーボンと担持した白金の重量比は1：1とした。ついで、この白金を担持したカーボン粉末を高分子電解質のアルコール溶液中に分散させ、スラリー化した。

【0097】

一方、電極となる厚さ $250 \mu\text{m}$ のカーボンペーパーを、フッ素樹脂の水性デイスパージョン（ダイキン工業（株）製のネオフロンND1）に含浸した後、これを乾燥し、 400°C で30分加熱処理することで撥水性を付与した。つぎに撥水処理を施した前記カーボンペーパーの片面にカーボン粉末を含む前記スラリーを均一に塗布して触媒層を形成し、これを電極とした。

【0098】

以上の方法で作成した2枚のカーボンペーパー電極を、触媒層を形成した面を内側に向け、高分子電解質膜を挟んで重ね合わせた後、乾燥した。以上のカーボンペーパー電極は、長さ 3.6 cm 、幅を 9 cm とし、十分に大きい長さ・幅を有する高分子電解質膜の中央に、一定の間隔を置いて5枚配置し、単一面内で5分割した電極を試作した。供給する燃料ガスがリークしたり、互いに混合しないように、電極の周囲に高分子電解質膜を挟んで、約 $250 \mu\text{m}$ の厚みのシリコン

ゴムのシートを配し、120℃で5分間ホットプレスし、MEA（電極電解質膜接合体）を得た。

【0099】

セパレータ板は、厚さが4mmで、その表面には切削加工により幅2mm、深さ1mmのガス流路1を刻んでおり、その周辺部にはガスのマニホールド孔2と冷却水のマニホールド孔3を配した。このような単電池を2セル積層した後、冷却水が流れる冷却流路を、セパレータに形成した冷却部を積層し、このパターンを繰り返して積層した。冷却部のシール用Oリングは用いなかった。

【0100】

このような電池構成単位を20セル積層し、両端部には金属製の集電板と電気絶縁材料の絶縁板、さらに端板と締結ロッドで固定した。この時の締結圧はセパレータの面積当たり10kgf/cm²とした。この20セル電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を75℃に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口を絞って、ガス出口部の圧力がゲージ圧で2.0kg·f/cm²となるよう調整した。75℃に設定した冷却水量を2L/min流し、U_f（燃料ガス中の水素の消費率）=80%、U_o（酸化剤ガス中の酸素の消費率）=50%に設定して電池面内の性能分布を調べた。

【0101】

図7には、20セル積層した電池を、0.7A/cm²の定電流密度で運転した場合の20セルの平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5分割した電池の最もガス入り口側に近いセルをNo. 1とし、順次No. 2、No. 3、No. 4として、最もガス出口側に近いセルをNo. 5とした。このとき、冷却水流量を比較的少なくしたため、No. 1からNo. 5のセルの間で温度分布が発生した。電流密度が0.7A/cm²の場合の20セルの平均セル温度は、No. 1が75.0℃、No. 2が76.0℃、No. 3が77.8℃、No. 4が80.8℃、No. 5が82.0℃と、ガスの流れに対して上流部ほど温度が低く、下流部ほど温度が高い分布となった。また、このときの温度分布

はN o. 1 からN o. 5 までが直線的な温度分布ではなく、直線的より上に凸な温度分布であった。

【0 1 0 2】

図7より、 0.7 A/cm^2 の電流密度の場合、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかしながら、バブラー温度依存性は、どのセルN o. においても同様の傾向を示し、全てのセルにおいて非常に安定した特性を示した。

【0 1 0 3】

一般に、空気極側では、生成水の発生が起こるため、ガス出口に近い側ほど水蒸気分圧は増大する。一方、ガス入口部の圧力損失により、ガス出口部に比べてガス入口部が高圧となるため、ガス入口部の相対湿度が上昇する。しかしながら、本実施例においては、酸化剤ガスバブラー温度が 70°C の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.1 \text{ kg} \cdot \text{f/cm}^2$ と比較的低く、ガス入口部の圧力損失によるガス入口部での相対湿度の上昇より、生成水の発生によるガス出口部の水蒸気分圧の増大の効果の方が大きく作用し、そのため、本来ガス出口側の方がオーバーフラッディング状態にあり、ガス入口側の方がオーバードライ状態にあったのを、温度分布によってガス出口側の温度を相対的に上昇させる結果となったため、ガス出口側のオーバーフラッディングを抑制し、ガス入口側のオーバードライも抑制し、安定な電池特性を得る効果となった。

【0 1 0 4】

0.7 A/cm^2 の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (v) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 (ΔP) の積の絶対値 ($v \cdot \Delta P$) との関係を表9に示す。

【0 1 0 5】

【表9】

バブラー温度($^\circ\text{C}$)		30	40	50	55	60	65
v・ ΔP ($\text{kg} \cdot \text{f/s} \cdot \text{m}$)	ガス入口	26,000	20,000	15,000	12,000	10,000	8,000
	ガス出口	30,000	22,000	17,000	14,000	11,000	10,000

【0106】

以上のことから、 0.7 A/cm^2 の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速（ v ）と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差（ ΔP ）の積の絶対値（ $v \cdot \Delta P$ ）の最適な範囲は、 $8,000 \sim 30,000 \text{ kg} \cdot \text{f/s} \cdot \text{m}$ であった。また、上記条件下では、電池の単一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。

【0107】

【発明の効果】

本発明によると、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差とで表される関数によって、最適な運転状態が表されるよう調整して運転することによって、高分子電解質型燃料電池を高性能で安定に運転可能であることが判明した。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の実施例である高分子電解質型燃料電池のセパレーターの構成図

【図2】

本発明の第1の実施例である高分子電解質型燃料電池の特性図

【図3】

本発明の第2の実施例である高分子電解質型燃料電池の特性図

【図4】

本発明の第3の実施例である高分子電解質型燃料電池の特性図

【図5】

本発明の第4の実施例である高分子電解質型燃料電池の特性図

【図6】

本発明の第5の実施例である高分子電解質型燃料電池の特性図

【図7】

本発明の第6の実施例である高分子電解質型燃料電池の特性図

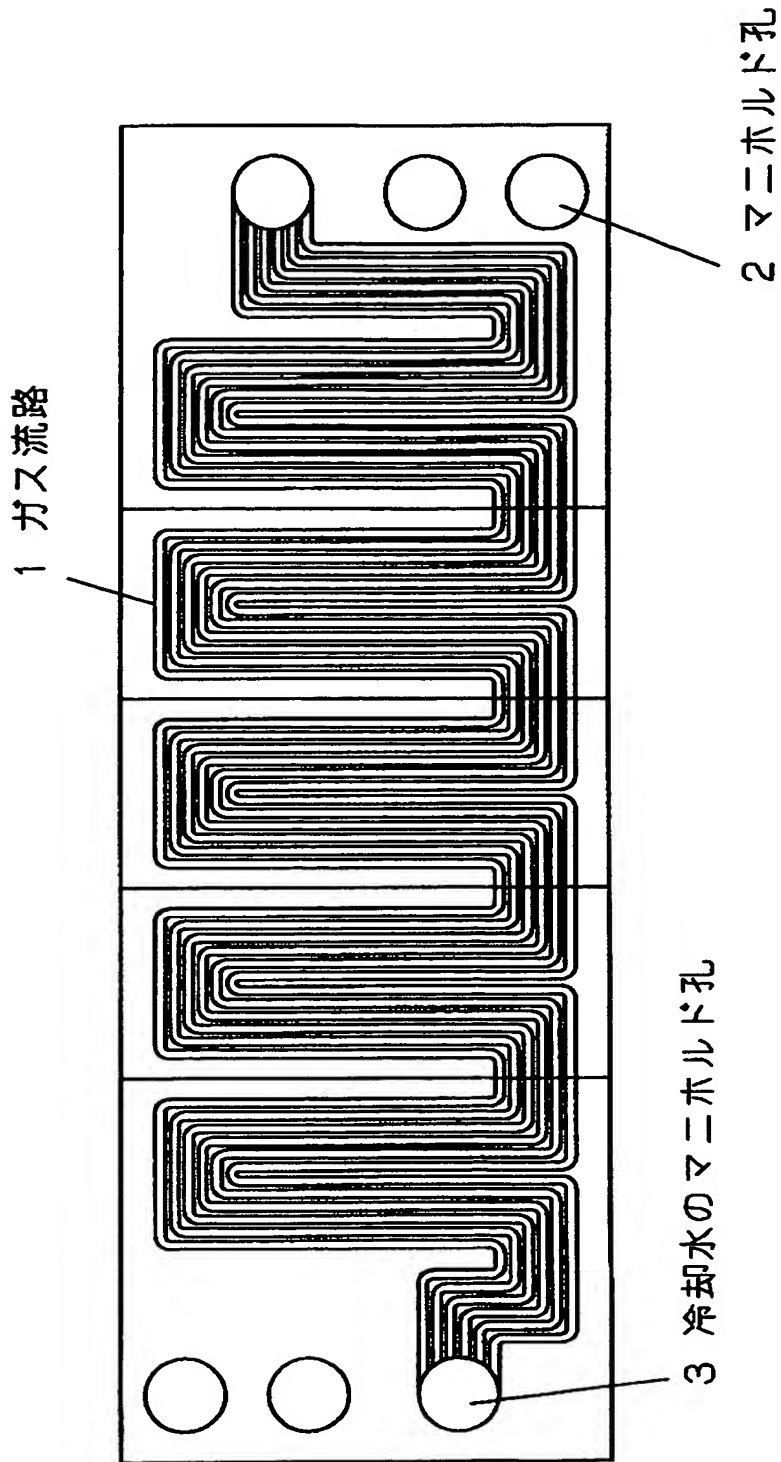
【符号の説明】

- 1 ガス流路
- 2 マニホルド孔
- 3 冷却水のマニホルド孔

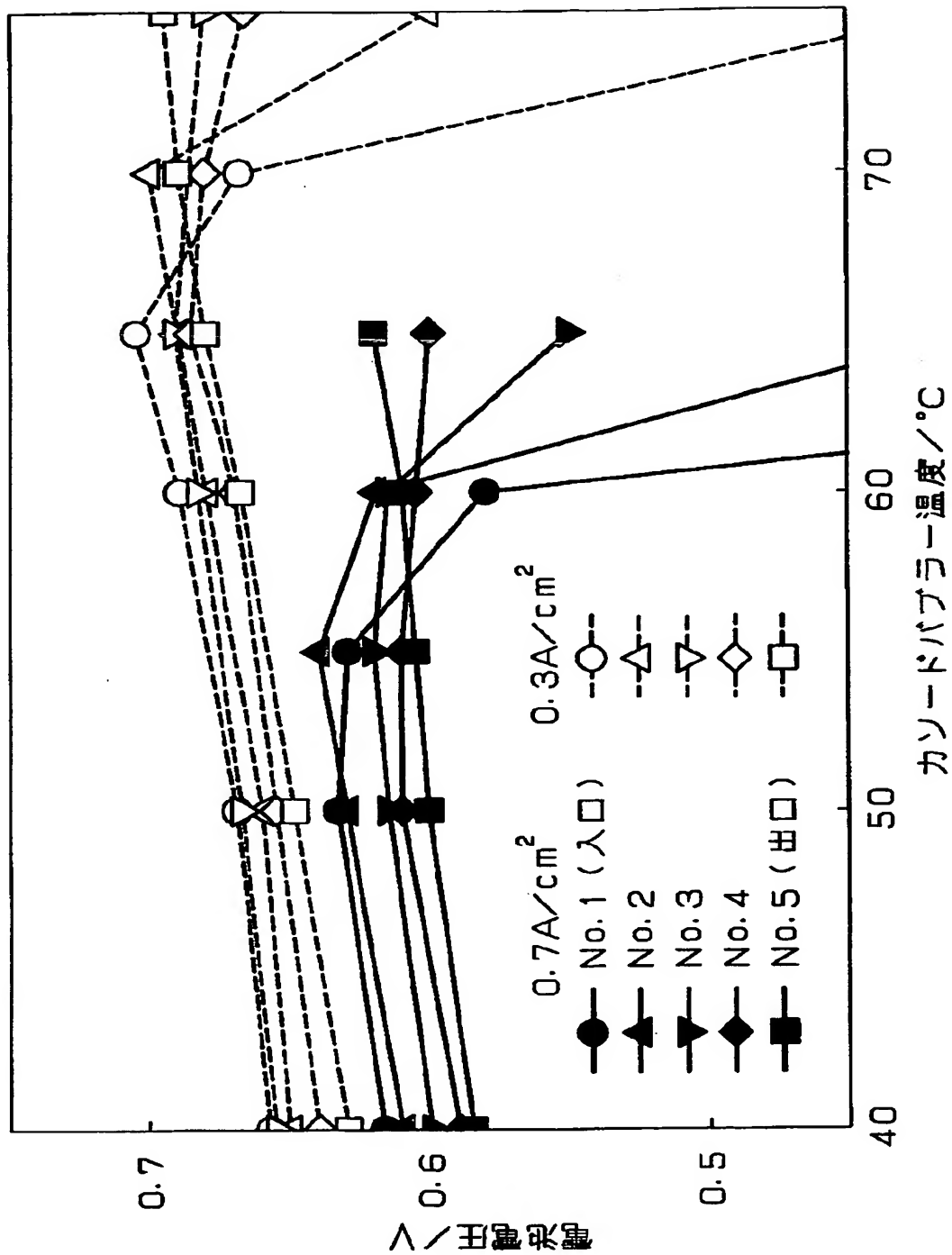
【書類名】

図面

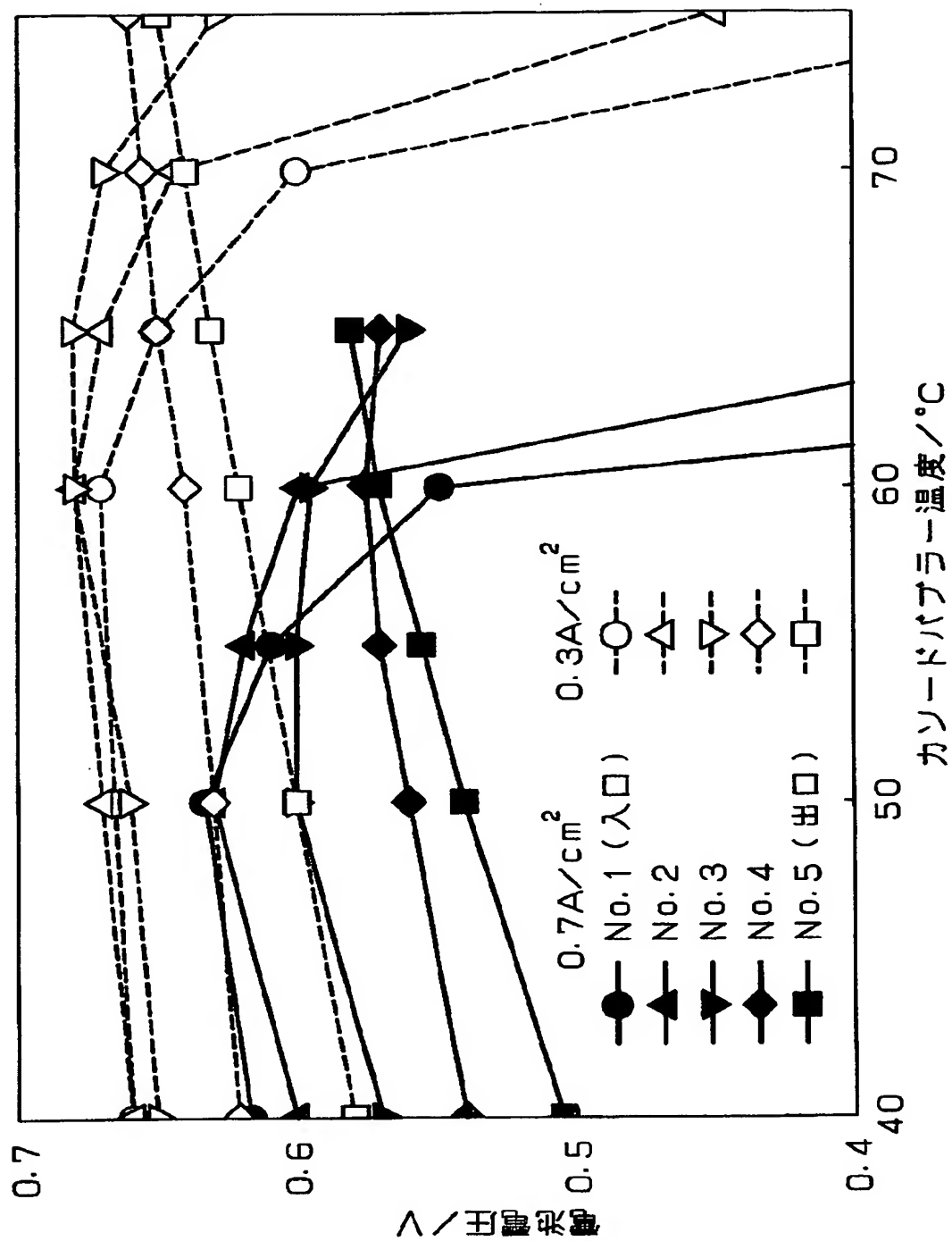
【図 1】



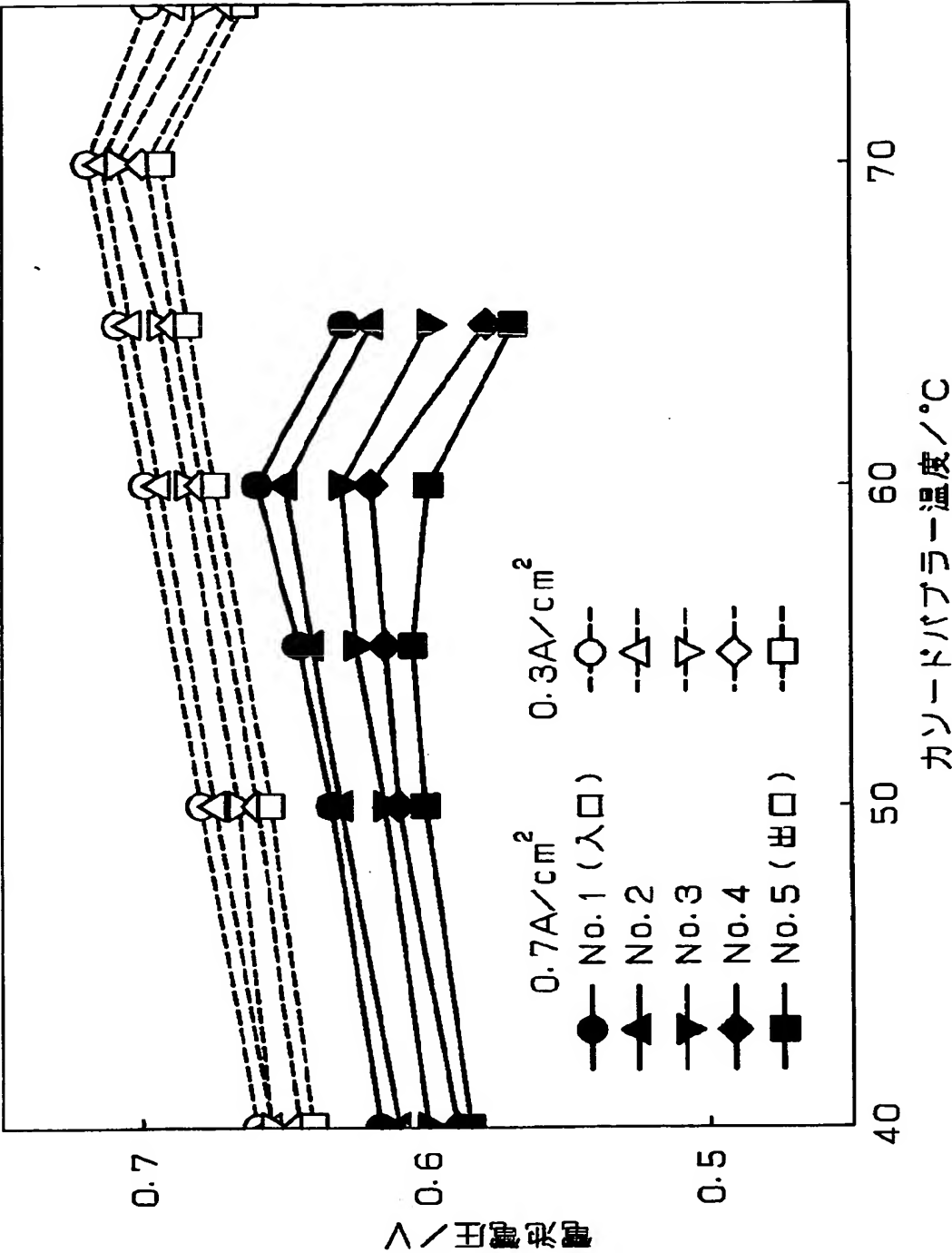
【図 2】



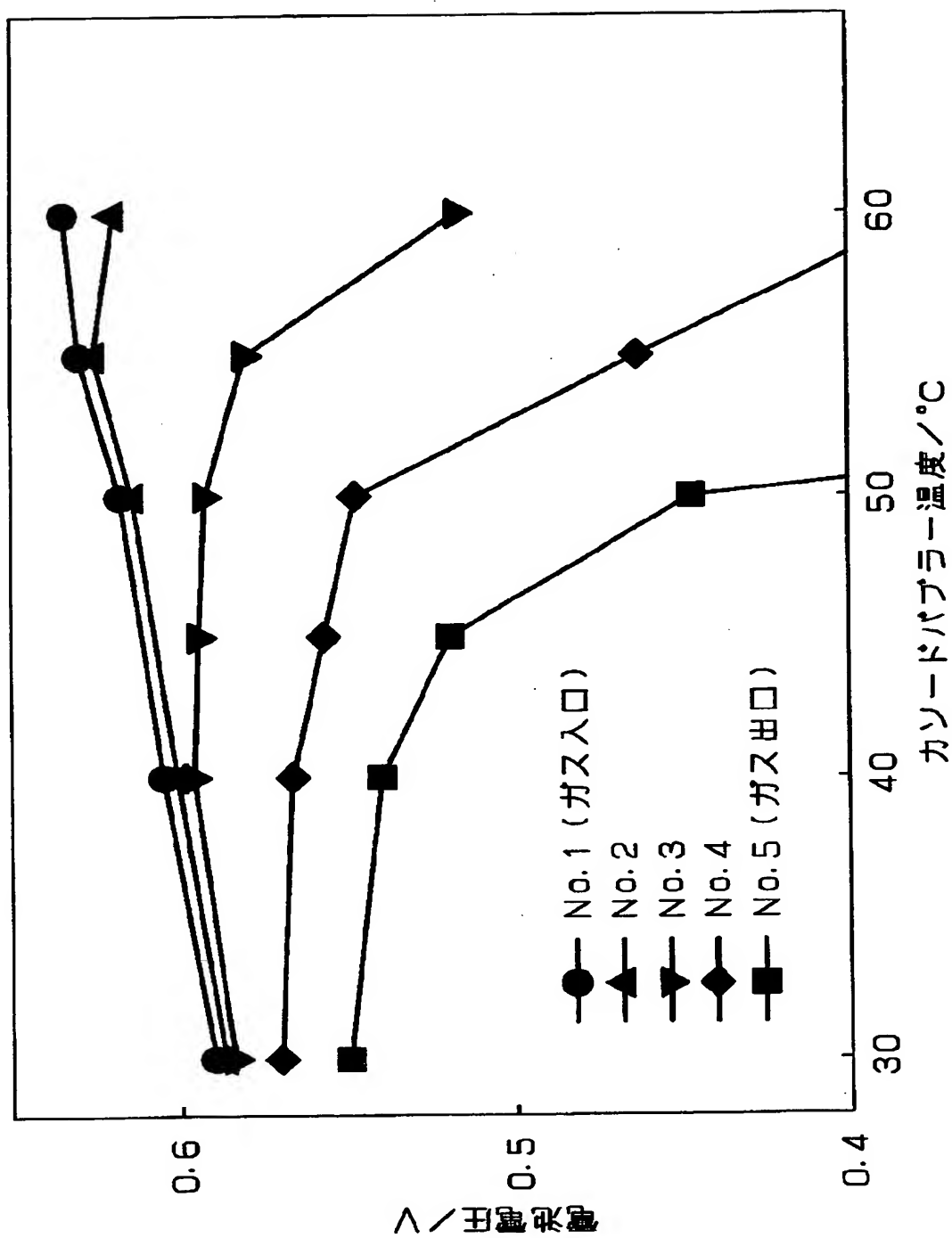
【図 3】



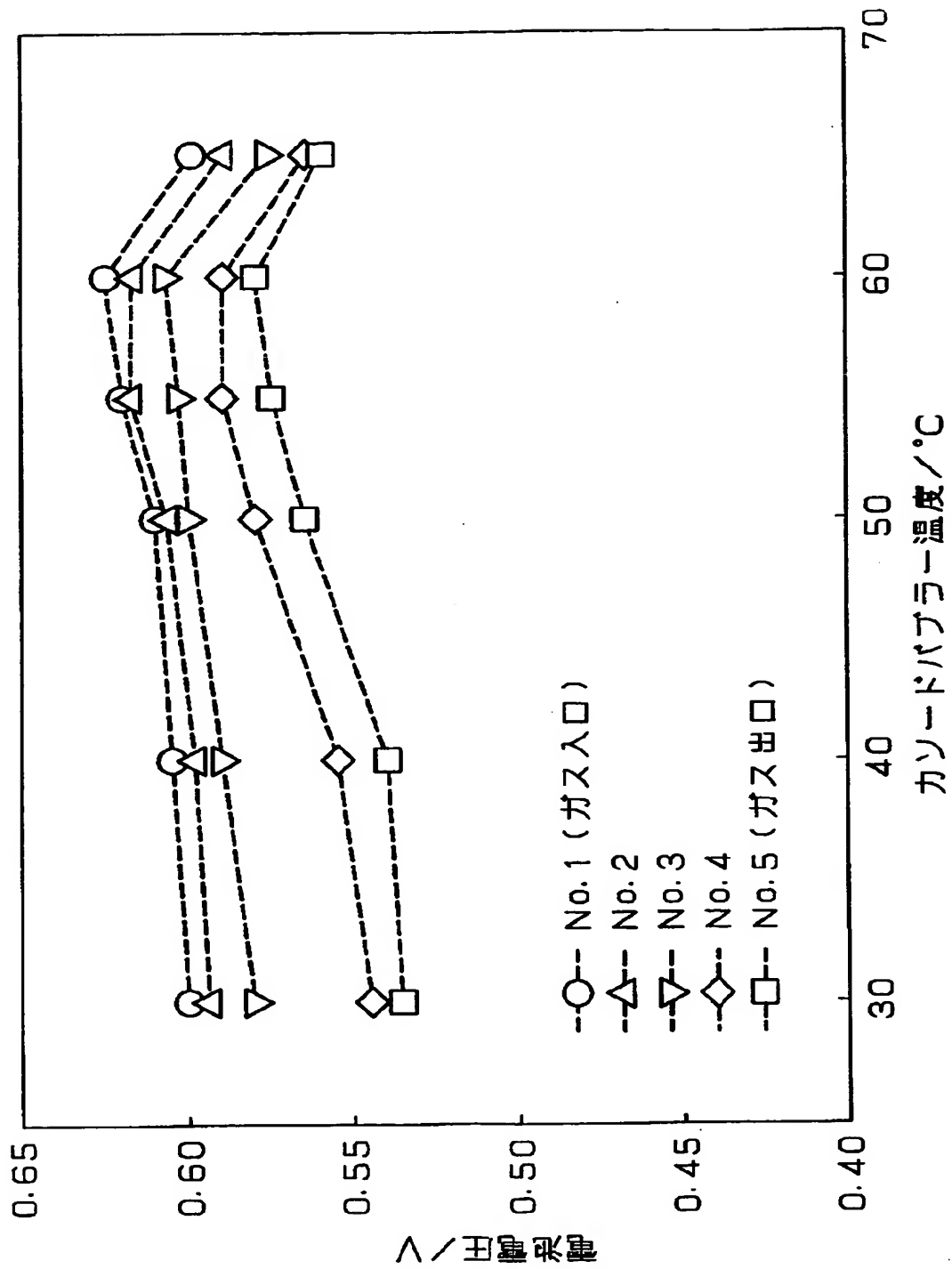
【図 4】



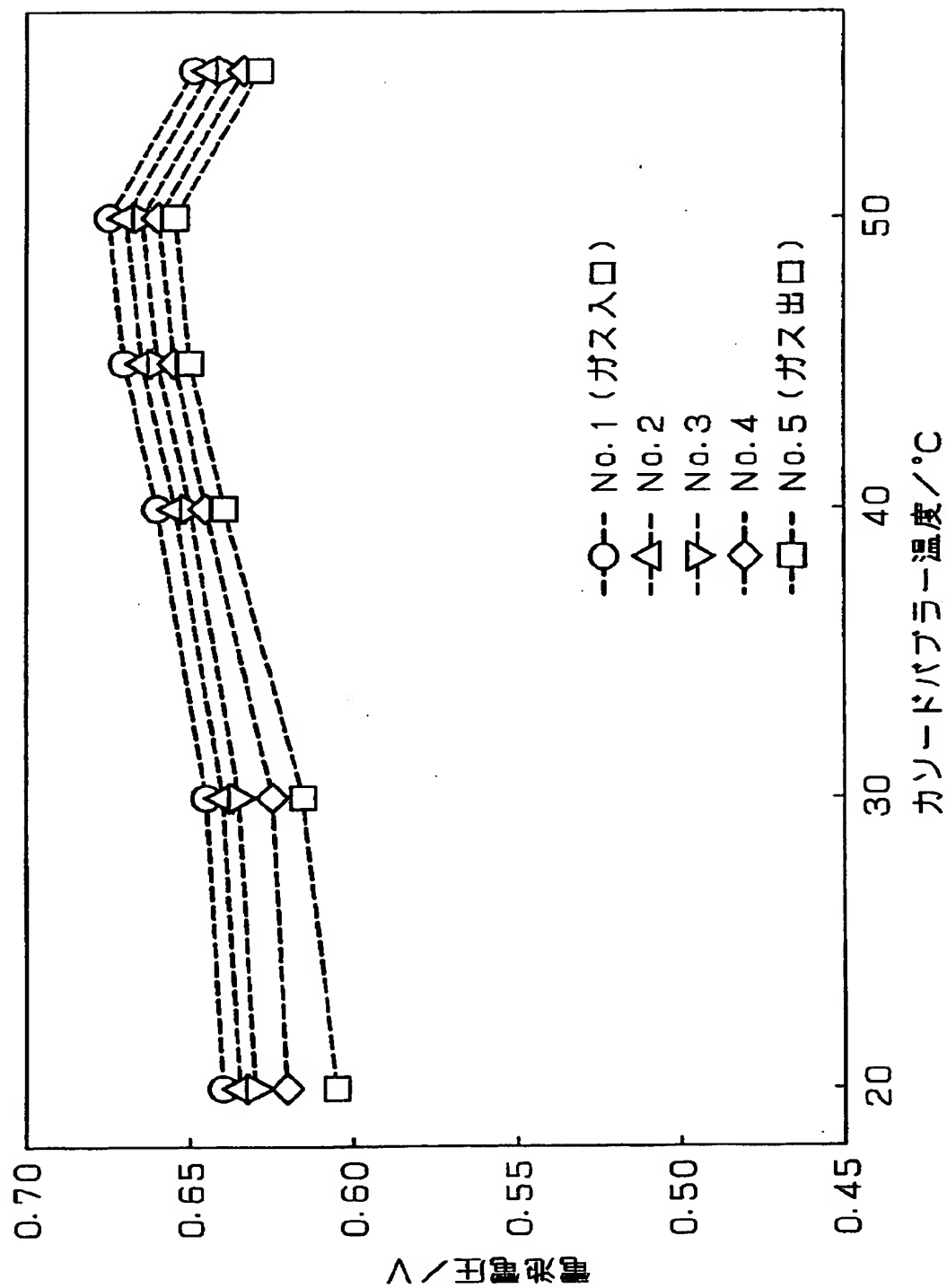
【図 5】



【図6】



【図 7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来、高分子電解質型燃料電池は、電池の単一面内で性能分布が発生し、性能分布が大きい場合には、特に積層電池とした場合、安定的に運転することが困難であった。

【解決手段】 上記課題を解決するため、本発明の高分子電解質型燃料電池は、冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差とで表される関数によって、最適な運転状態が表されるよう調整して運転することで上記問題点を解決した。

【選択図】 図 2

特平 11-117620

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005821]

1. 変更年月日	1990年 8月28日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府門真市大字門真1006番地
氏 名	松下電器産業株式会社